

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-240670

(43)Date of publication of application : 04.09.2001

---

(51)Int.Cl. C08G 73/10  
C08G 59/20  
C08G 59/42  
C08G 77/455  
C08G 81/00  
C08L 79/08  
// C09D179/08  
C09J179/08

---

(21)Application number : 2000-055552

(71)Applicant : ARAKAWA CHEM IND CO LTD

(22)Date of filing : 01.03.2000

(72)Inventor : AIDA HIDEKI  
TONO TETSUJI

---

(54) SILANE MODIFIED POLYAMIDE-IMIDE RESIN, ITS RESIN COMPOSITION AND METHOD FOR PRODUCING THE RESIN

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a silane modified polyamide-imide resin capable of providing a cured material maintaining flexibility and extensibility being essential performances of polyamide-imide resin and yet much improved mechanical strength and heat resistance and its resin composition and to provide a method for producing the resin.

SOLUTION: This silane modified polyamide-imide resin is characterized by subjecting a polyamide-imide resin (1) containing a carboxy group and/or an acid anhydride group at a molecular end and a glycidyl ether group- containing alkoxy silane partial condensate (2) obtained by a dealcoholization reaction between a glycidol (A) and an alkoxy silane partial condensate (B) to a ring-opening esterification reaction. A composition of the silane modified polyamide-imide resin is obtained. A method for producing the silane modified polyamide-imide resin is provided.

---

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 03.08.2000

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3387882

[Date of registration] 10.01.2003

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(10) 日本国特許 (P) (12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2001-240670  
(P2001-240670A)  
(43) 公開日 平成13年9月4日(2001.9.4)

(61) Int. Cl. <sup>7</sup>	識別記号	P 1	チーエー(参考)
C 08 G		C 08 G	79/10
			59/20
			59/42
			77/455
			81/00
			41002
			41031
			41035
			41036
			41038

審査請求 有 請求項の数 6 OL (全 8 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特開2000-55552(P2000-55552)

(71) 出願人 00018414 荒川化学工業株式会社

(22) 出願日 平成12年3月1日(2000.3.1)

(72) 発明者 大阪府大阪市中央区平野町1丁目3番7号 合田 秀樹  
大阪府大阪市城東区今福南3丁目4番33号 荒川化学工業株式会社研究室内 東野 哲二  
大阪府大阪市城東区今福南3丁目4番33号 荒川化学工業株式会社研究室内 (74) 代理人 100056215 伊理士 三枝 英二 (外 8 名)

(54) 発明の名称 シラン変性ポリアミドイミド樹脂、その樹脂組成物及びその製造方法

最終頁に続く

(57) 要約  
【課題】 ポリアミドイミド樹脂の本来の性能である柔軟性や伸張性を維持ししかも機械的強度や耐熱性が一層向上した硬化物を取得しうるシラン変性ポリアミドイミド樹脂、その樹脂組成物及びその製造方法を提供すること。  
【解決手段】 カルボキシル基及び/又は酸無水物基を分子末端に有するポリアミドイミド樹脂 (1) と、グリシドール (A) とアルコキシシラン部分縮合物 (B) との脱アルコール反応によって得られるグリシジエーテル基含有アルコキシシラン部分縮合物 (2) とを、開環エスチル化反応させてなることを特徴とするシラン変性ポリアミドイミド樹脂、その樹脂組成物及びその製造方法。

【解決手段】 カルボキシル基及び/又は酸無水物基を分子末端に有するポリアミドイミド樹脂 (1) と、グリシドール (A) とアルコキシシラン部分縮合物 (B) との脱アルコール反応によって得られるグリシジエーテル基含有アルコキシシラン部分縮合物 (2) とを、開環エスチル化反応させてなることを特徴とするシラン変性ポリアミドイミド樹脂、その樹脂組成物及びその製造方法。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 カルボキシル基及び/又は酸無水物基を分子末端に有するポリアミドイミド樹脂 (1) と、グリシドール (A) とアルコキシシラン部分縮合物 (B) との脱アルコール反応によって得られるグリシジエーテル基含有アルコキシシラン部分縮合物 (2) とを、開環エスチル化反応させてなることを特徴とするシラン変性ポリアミドイミド樹脂。

【請求項2】 請求項1に記載のシラン変性ポリアミドイミド樹脂を含有することを特徴とするシラン変性ポリアミドイミド樹脂組成物。

【請求項3】 シラン変性ポリアミドイミド樹脂の含有量が、組成物の固形分中50重量%以上である請求項2に記載の樹脂組成物。

【請求項4】 カルボキシル基及び/又は酸無水物基を分子末端に有するポリアミドイミド樹脂 (1) と、グリシドール (A) とアルコキシシラン部分縮合物 (B) との脱アルコール反応によって得られるグリシジエーテル基含有アルコキシシラン部分縮合物 (2) とを、開環エスチル化反応させてなることを特徴とするシラン変性ポリアミドイミド樹脂の製造方法。

【請求項5】 上記ポリアミドイミド樹脂 (1) と、上記グリシジエーテル基含有アルコキシシラン部分縮合物 (2) との開環エスチル化反応を、溶剤の存在下に行う請求項4に記載の製造方法。

【請求項6】 上記ポリアミドイミド樹脂 (1) と、上記グリシジエーテル基含有アルコキシシラン部分縮合物 (2) との反応温度が、室温～150℃である請求項4に記載の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、新規なシラン変性ポリアミドイミド樹脂、その樹脂組成物及びその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 従来より、ポリイミド系重合体は、耐熱性や電気的性質が優れ、しかも柔軟性があるため、耐熱性材料や絶縁性材料として、成形物、フィルム、コーティング剤等の各種形態で幅広く用いられている。これらの中で、ポリアミドイミド樹脂皮膜は、ポリイミド系重合体の中でも、特に柔軟性に富み、伸張率が高い。

【0003】 一般に、ポリアミドイミド樹脂は、芳香族トリカルボン酸とジアミンを、原料とし、これらを縮合反応して合成される。ポリアミドイミド樹脂は、分子量が物大するにつれ、柔軟性や伸張率が増し、耐熱性等が向上するが、一方で溶剤への溶解性が低下したり高粘度化するため取扱作業性が劣る傾向がある。また、当該分子量を下げると、弾性率は向上するが、柔軟性、伸張率、耐熱性のいずれの性能も低下する傾向にある。

【0004】 このようなポリアミドイミド樹脂等を含め、一般的にポリイミド系重合体に対して一層優れた耐熱性と機械的強度を付与する目的で、充填材等が適宜に添加されるが、これら組成物では耐熱性、弾性率が若干向上するものの十分ではなく、却って柔軟性や伸張率が低下し、得られる皮膜は脆くなってしまふ。

【0005】 また、特開昭62-283153号公報、特開昭63-99234号公報、特開昭63-99235号公報、特開昭63-99236号公報等には、ポリアミド樹脂組成物中でアルコキシシランを重縮合させてなるハイブリッド材料が提案されている。しかしながら、これらの材料から得られる皮膜の場合は、シリカが当該皮膜中に十分に分散しておらず、そのため皮膜が白化する傾向がある。また、シリカを分散させる結果、伸張率は大幅に低下し、柔軟性が損なわれる等の問題がある。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】 本発明の目的は、ポリアミドイミド樹脂の本来の性能である柔軟性や伸張性を維持ししかも機械的強度や耐熱性が一層向上した硬化物を取得しうるシラン変性ポリアミドイミド樹脂、その樹脂組成物及びその製造方法を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】 本発明者は、前記問題を解決すべく、乾式焼付を重ねた結果、特定のポリアミドイミド樹脂と特定のアルコキシシラン部分縮合物とを反応させて得られるシラン変性ポリアミドイミド樹脂が、①機械的強度や耐熱性と、②柔軟性や伸張率との相反する性能を同時に満足できていることを見出し、これに基づき本発明を完成するに至った。

【0008】 即ち、本発明は、カルボキシル基及び/又は酸無水物基を分子末端に有するポリアミドイミド樹脂 (1) と、グリシドール (A) とアルコキシシラン部分縮合物 (B) との脱アルコール反応によって得られるグリシジエーテル基含有アルコキシシラン部分縮合物 (2) とを、開環エスチル化反応させてなることを特徴とするシラン変性ポリアミドイミド樹脂に係る。

【0009】 また、本発明は、上記シラン変性ポリアミドイミド樹脂を含有することを特徴とするシラン変性ポリアミドイミド樹脂組成物にも係る。

【0010】 更に、本発明は、カルボキシル基及び/又は酸無水物基を分子末端に有するポリアミドイミド樹脂 (1) と、グリシドール (A) とアルコキシシラン部分縮合物 (B) との脱アルコール反応によって得られるグリシジエーテル基含有アルコキシシラン部分縮合物 (2) とを、開環エスチル化反応させてなることを特徴とするシラン変性ポリアミドイミド樹脂の製造方法にも係る。

【0011】

【発明の実施の形態】 本発明において使用されるポリアミドイミド樹脂 (1) は、分子中にアミド結合とイミド



り、又は30℃を越えたと別反応であるアルコキシシリル部位同士の縮合反応が進行するため、いずれも好ましくない。反応温度が40～130℃程度の場合の全反応時間は、通常1～7時間程度である。

[0034] また、当該反応は、溶剤の存在下で行うことが好ましい。当該溶剤としては、ポリアミドイミド樹脂(1)とアルコキシラン部分縮合物(2)をともに溶解する有機溶剤であれば特に制限はない。このような有機溶剤としては、例えば、N-メチルピロリドン、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等が使用できる。また、これらの良溶媒に前記ポリアミドイミド樹脂(1)と前記アルコキシラン部分縮合物(2)を所出しない範囲で、キシレン、トルエン等の貧溶媒を溶媒全体の30重量%以下の範囲で使用しても構わない。

[0035] 反応系内へ上記溶剤を添加使用する方法は、特に限定されず、次の3つの溶剤添加使用方法から少なくとも1つを選択採用すればよい。①トリカルボン酸とジエチレンジアミンとから、又はトリカルボン酸とジエチレンジアミンとから前記ポリアミドイミド樹脂(1)を合成する時に加えた溶剤をそのまま使用する。②グリシドール(A)とアルコキシラン部分縮合物(B)とから前記アルコキシラン部分縮合物(2)を合成する時に加えた溶剤をそのまま使用する。③前記ポリアミドイミド樹脂(1)と前記アルコキシラン部分縮合物(2)との反応の前に加える。

[0036] また、前記ポリアミドイミド樹脂(1)と前記アルコキシラン部分縮合物(2)の反応には、反応を促進するための触媒を添加することができ、例えば、1、8-ジエザ-ビシクロ[5.4.0]ヘプタセン-7、トリエチレンジアミン、ベンジルジメチルアミン、トリエタノールアミン、ジメチルアミン、エタノール、トリメチルアミン、ジメチルアミン、フェニル等の三級アミン類；2-メチルアミン、2-フェニルアミン、2-ベンザジリルアミン等のフェニルアミン類；トリブチルホスフィン、メチルジフェニルホスフィン、トリフェニルホスフィン、ジフェニルホスフィン、フェニルホスフィン等の有機ホスフィン類；テトラフェニルホスフィン、テトラフェニルボレート、2-エチル-4-メチルイミダゾール、テトラフェニルボレート、N-メチルモルホリン、テトラフェニルボレート等のテトラフェニルボレート類等を用いることができる。触媒は、ポリアミドイミド樹脂(1)100重量部に対し、0.1～5重量部程度の割合で使用するのが好ましい。

[0037] かくして本発明のシラン変性ポリアミドイミド樹脂を取得できる。当該シラン変性ポリアミドイミド樹脂は、その分子中にアルコキシラン部分縮合物(2)に由来するアルコキシ基を有している。このアルコキシ基は、溶剤の蒸発や加熱処理により、又は分子(短鎖)との反応により、シラン反応や酸アルコー

ル縮合反応して、相互に結合した硬化物を形成する。かかる硬化物は、ゲル化した微細なシリカ部位(シロキサン結合の高次網目構造)を有するものである。

[0038] 本発明のシラン変性ポリアミドイミド樹脂組成物は、当該シラン変性ポリアミドイミド樹脂を含有することを特徴とするものである。当該樹脂組成物は、本発明の目的を逸脱しない範囲で、所望により、従来公知のポリアミドイミド樹脂、前記アルコキシラン部分縮合物(B)、前記グリシドール-エーテル基含有アルコキシラン部分縮合物(2)等を、適宜配合しても良い。

[0039] 上記樹脂組成物は、通常、固形分濃度10～40重量程度の液状であるのが適当である。また、その媒体としては、例えば、前記の開環エスチル化反応に用いる良溶媒や、エスチル系、ケトン系、アルコー系、フェノール系等の極性溶剤を使用できる。また、当該良溶媒に、キシレン、トルエン等の貧溶媒を併用することも可能である。

[0040] また、本発明樹脂組成物におけるシラン変性ポリアミドイミド樹脂の含有量は、特に限定されないが、通常、組成物の固形分中50重量%以上であることが好ましい。

[0041] 本発明樹脂組成物には、本発明の効果を損なわない範囲で、必要に応じて、充填剤、離型剤、表面処理剤、硬化剤、粘度調整剤、可塑剤、抗腐剤、防曇剤、レベリシヤ剤、消泡剤、着色剤、安定剤、カブリシヤ剤等を適宜に配合することができる。

[0042] 本発明のシラン変性ポリアミドイミド樹脂組成物を、コーティング、含浸等の各種方法で、各種基材に塗工した後、加熱乾燥することにより、所望の硬化物が形成できる。当該硬化物は、シラン変性ポリアミドイミド樹脂のアルコキシシリル基から形成されるシリカ(SiO<sub>2</sub>)部位、即ちシロキサン結合の高次網目構造を有している。そのため、当該硬化物は、シリカ部位に起因して、高弾性を発揮する。尚、硬化物中に存在するシリカ部位の割合は、特に限定されないが、硬化物の高い柔軟性(伸縮率)を得るためには、通常30重量%以下とするのが好ましい。

[0043] 本発明のシラン変性ポリアミドイミド樹脂及び当該樹脂組成物は、耐熱性、耐熱安定性、耐熱材料、IC封止材、耐熱塗料、フリンタ配線基板、耐熱接着剤等の種々の用途に使用できる。

[0044] [実施例] 以下、製造例、実施例及び比較例を挙げて、本発明をより一層具体的に説明する。尚、各例中、%は原則として重量基準である。

[0045] 製造例1 (ポリアミドイミド樹脂(1)の製造)  
攪拌機、冷却管、温度計を備えた反応装置に、N-メチルピロリドン1160g、キシレン290g、無水トリ

メリット酸345.8gと4、4'-ジフェニルメタジエチレンジエーテル425.0gを入れ、窒素気流下90℃で2時間反応させた。ついで、窒素気流を止め、1時間かけて135℃まで温度を上昇させた後、3.5時間反応を継続した。その後、冷却し、N-メチルピロリドン/キシレン=4/1(重量比)で希釈し、不揮発分25%のポリアミドイミド樹脂溶液(1A)を得た。当該ポリアミドイミド樹脂の重量平均分子重(GPC測定によるスチレン換算値)は12000であった。

[0046] 製造例2 (ポリアミドイミド樹脂(1)の製造)  
製造例1と同様の反応装置に、N-メチルピロリドン1175g、キシレン294g、無水トリメリット酸345.8gと4、4'-ジフェニルメタジエチレンジエーテル437.3gを入れ、窒素気流下90℃で2時間反応させた。ついで、窒素気流を止め、1時間かけて135℃まで温度を上昇させた後、15時間反応を継続した。その後、冷却し、N-メチルピロリドン/キシレン=4/1(重量比)で希釈し、不揮発分25%のポリアミドイミド樹脂溶液(1B)を得た。当該ポリアミドイミド樹脂の重量平均分子重(GPC測定によるスチレン換算値)は30000であった。

[0047] 製造例3 (グリシドール-エーテル基含有アルコキシラン部分縮合物(2)の製造)  
製造例1と同様の反応装置に、グリシドール(日本油脂(株)製、商品名「エビオールOH」)250.00g及びブタラキエチレンジエーテル部分縮合物(多摩化学(株)製、商品名「メチルシリケート51」)の平均回数4)799.81gを仕込み、窒素気流下、攪拌しながら、90℃に昇温後、触媒としてジブチルジラレー1.00gを加え、脱メタノール反応させた。反応中、メタノールを反応系内から分水器を使って溜去し、その量が、約90gに達した時点で、冷却した。昇温後冷却開始までに要した時間は6時間であった。50℃に冷却後、窒素吹き込み栓と分水器を取り去り、減圧ライントを繋いで、13kPaで約15分間、系内に残存するメタノールを減圧によって除去した。その後、フラスコを室温まで冷却し、929.81gのグリシドールエーテル基含有アルコキシラン部分縮合物(2A)を得た。

[0048] 尚、仕込み時の(ブタラキエチレンジエーテル部分縮合物のメトキシ基の当量)ノ(グリシドールの水酸基の当量)の比率は5、(生成物1分子当たりのSiの平均回数)ノ(生成物1分子当たりのグリシドールエーテル基の平均回数)は2である。

[0049] 製造例4 (グリシドール-エーテル基含有アルコキシラン部分縮合物(2)の製造)  
製造例1と同様の反応装置に、グリシドール(日本油脂(株)製、商品名「エビオールOH」)178.74g

及びブタラキエチレンジエーテル部分縮合物(多摩化学(株)製、商品名「メチルシリケート56」)の平均回数1)892.63gを仕込み、窒素気流下、攪拌しながら、90℃に昇温後、触媒としてジブチルジラレー1.00gを加え、同温度で脱メタノール反応させた。反応中、メタノールを反応系内から分水器を使って溜去し、その量が、約75gに達した時点で、冷却した。昇温後冷却開始までに要した時間は6時間であった。50℃に冷却後、窒素吹き込み栓と分水器を取り去り、減圧ライントを繋いで、13kPaで約15分間、系内に残存するメタノールを減圧によって除去した。この間、減圧によって約8.0gのメタノールが除去された。その後、フラスコを室温まで冷却し、989.37gのグリシドール-エーテル基含有アルコキシラン部分縮合物(2B)を得た。

[0050] 尚、仕込み時の(ブタラキエチレンジエーテル部分縮合物のメトキシ基の当量)ノ(グリシドールの水酸基の当量)の比率は7、(生成物1分子当たりのSiの平均回数)ノ(生成物1分子当たりのグリシドールエーテル基の平均回数)は3.4である。

[0051] 実施例1 (シラン変性ポリアミドイミド樹脂の製造)  
製造例1と同様の反応装置に、製造例1で得たポリアミドイミド樹脂溶液(1A)200gと製造例3で得たグリシドール-エーテル基含有アルコキシラン部分縮合物(2A)5.17gを仕込み、95℃に昇温後、4時間反応させた。N-メチルピロリドン8.26gを加えて、冷却し、不揮発分25%のシラン変性ポリアミドイミド樹脂溶液を得た。

[0052] 実施例2～5  
実施例1において、ポリアミドイミド樹脂溶液(1)とグリシドール-エーテル基含有アルコキシラン部分縮合物(2)の種類及び使用量、及びN-メチルピロリドンの使用量のいずれかを表1に示すように変更した以外は、実施例1と同様に反応させ、それぞれ不揮発分25%のシラン変性ポリアミドイミド樹脂溶液を得た。

[0053] [表1]  
表1

実施例	1	2	3	4	5
ポリアミドイミド樹脂溶液(1A)	200	200			200
グリシドール-エーテル基含有アルコキシラン部分縮合物(2A)	5.17		200	200	
グリシドール-エーテル基含有アルコキシラン部分縮合物(2B)		5.17	164.05	178.74	
グリシドール-エーテル基含有アルコキシラン部分縮合物(2C)		5.17	164.05	178.74	

[0054] 比較例1  
製造例1で得たポリアミドイミド樹脂溶液(1A)を、そのまま比較用樹脂溶液とした。

[0055] 比較例2  
製造例1で得たポリアミドイミド樹脂溶液(1A)200gにブタラキエチレンジエーテル部分縮合物(多摩化学

(株) 製、商品名「メチルシリケート56J」を、5. 1g配合した溶液を、比較用樹脂溶液とした。

[0056] 比較例3

製造例2で得たポリアミドイミド樹脂溶液(1B)を、そのまま比較用樹脂溶液とした。

[0057] 比較例4

製造例2で得たポリアミドイミド樹脂溶液(1B)2.0gにテトラメトキシジシラン部分縮合物(多環化学(株) 製、商品名「メチルシリケート56J」)を、2. 4

7g混合した溶液を、比較用樹脂溶液とした。

[0058] 次に、各製造例及び比較例で得られた各ポリアミドイミド樹脂について、引っぱり試験を行って、線形弾性率及び最大伸張率を調べた。

[0059] 硬化アクリルムの形成

実施例1〜5及び比較例1〜4で得たシラン変性又は無変性ポリアミドイミド樹脂溶液を、ガラス板上にアクリクエーダー(ウエット100μm)でコートし、乾燥器に入れ、80℃で30分、150℃で30分、250℃で30分、段階的に乾燥、硬化させた後、室温まで冷却し、硬化アクリルムを得た。

[0060] 比較例2及び4から得られた硬化膜は、白濁しているため、ガラス板から剥がす際、多数のクラックが入り、下記試験には使用できなかった。

[0061] 引っぱり試験

上記で得られた硬化アクリルム(アクリル幅15mm)を、テフロン製試験機(オリエンテック(株) 製、商品名「UCF-500J」)を用いて、25℃の雰囲気下に2.0mm/分の引っぱり速度で延伸し、線形弾性率と破断するまでのアクリルム伸び(最大伸張率)を測定した。3回の測定の平均値を表2に示す。

[0062] [表2]

表 2		
硬化アクリルムの種類	線形弾性率 (kg/mm <sup>2</sup> )	最大伸張率 (%)
比較例1	28.5	18
実施例1	30.7	20
実施例2	32.5	17
実施例5	38.8	22
比較例3	27.5	24
実施例3	33.5	22
実施例4	34.5	23

[0063] 表2から明らかなように、シラン変性することにより、ポリアミドイミドアクリルムの伸張率を維持したまま、弾性率を向上することができることが分かる。

[0064] また、上記で得られた硬化アクリルムのシリカ含有量を仕込み比率から算出した。即ち、上記硬化アクリルムであるポリアミドイミドシリカハイブリッド膜中に含まれるシリカ含有量(重量%)は、表3に示す通りである。

[0065] [0065] [表3]

表 3		
弾性率及びシリカ含有量の測定に用いたシリカ含有ポリマー樹脂	シリカ含有量 (%)	シリカ含有量 (%)
実施例1	4. 29	比較例1 0
実施例2	5. 81	比較例2 5. 81
実施例3	1. 64	比較例3 0
実施例4	2. 04	比較例4 2. 69
実施例5	2. 69	

[0066] [表3]

【発明の効果】 本発明のシラン変性ポリアミドイミド樹脂及びその樹脂組成物によれば、①機械的強度や耐熱性と、②柔軟性や高伸張率との相反する性能を同時に満足しているという顕著な効果を得る。また、当該シラン変性ポリアミドイミド樹脂及びその組成物によれば、高弾性率も実現できる。

Fターム(参考)

41002 C0641 C171 F0010 F0020  
F0090. FD130 FD180 F0200  
G01 G101 G600 G605 HA05  
41031 A457 A459 A804 A003 A001  
A005 AF10 AF12 AF13 AF15  
AF26  
41035 A403 A803 A806 BA15 CA04U  
CA041 CA11M CA111 EB03  
F002 F003 LB01 LB02 LB20  
41036 AK17 DB17 FB14 HA12 HA13  
JA01 JA06 JA07 JA08  
41038 D1051 GA06 GA15 LA02  
NA11 NA14 NA21 PB09  
41040 EH031 GA07 GA29 LA06  
LA08 LA09 NA19 QA01  
41043 PA09 PA15 PB14 PB15 QB32  
QB38 RA04 RA05 TA12 TA13  
UA012 UA122 UA262 VA012  
VA092

フロントページの続き

(51)Int. Cl.<sup>7</sup> 識別記号

C08L 79/08  
// C09D 179/08  
C09J 179/08

F1 子-リ-ド(参考)

C08L 79/08 C 4J040  
C09D 179/08 C 4J043  
C09J 179/08 B